

30.07.03

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

#2

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日

Date of Application:

2002年 7月31日

出願番号

Application Number:

特願2002-223999

[ ST.10/C ]:

[ JP 2002-223999 ]

出願人

Applicant(s):

信越石英株式会社

REC'D 28 AUG 2003	
WIPO	PCT

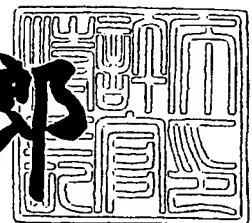
## PRIORITY DOCUMENT

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年 5月30日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

太田信一郎



Best Available Copy

出証番号 出証特2003-3041363

【書類名】 特許願

【整理番号】 PH0182

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 C03B 20/00  
C01B 33/18  
C30B 15/10

【発明者】

【住所又は居所】 福井県武生市北府2丁目13番60号 信越石英株式会社 武生工場内

【氏名】 大浜 康生

【発明者】

【住所又は居所】 福井県武生市北府2丁目13番60号 信越石英株式会社 武生工場内

【氏名】 外川 貴之

【特許出願人】

【識別番号】 000190138

【氏名又は名称】 信越石英株式会社

【代理人】

【識別番号】 100101960

【弁理士】

【氏名又は名称】 服部 平八

【電話番号】 03-3357-2197

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 027432

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9911965

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 シリコン単結晶引上げ用石英ガラスルツボおよびその製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 底部と直胴部を有するルツボ基体の内表面に内層が設けられたシリコン単結晶引上げ用石英ガラスルツボにおいて、前記内層がルツボ基体の底部最下端から直胴部上端面までの高さ（H）に対して少なくとも 0.25 H までが合成石英ガラス層、少なくとも 0.5 H～0.8 H の範囲が天然石英ガラス層又は天然及び合成混合石英ガラス層、残りの内層が合成石英ガラス層、天然石英ガラス層又は天然及び合成混合石英ガラス層のいずれかの層であることを特徴とする石英ガラスルツボ。

【請求項 2】 天然及び合成混合石英ガラスを形成する天然及び合成混合シリカ粉中の天然シリカ粉の混合比率が 30 % 以上であることを特徴とする請求項 1 記載の石英ガラスルツボ。

【請求項 3】 回転する型に装着した石英ガラスルツボ基体の内部キャビティを高温雰囲気にしたのち、該高温雰囲気内に合成シリカ粉と、天然シリカ粉又は天然及び合成混合シリカ粉を供給し、熔融ガラス化してルツボ基体の内表面に内層を形成するシリコン単結晶引上げ用石英ガラスルツボの製造方法において、前記ルツボ基体の底部最下端から直胴部上端面までの高さ（H）に対して少なくとも 0.25 H までを合成石英ガラス内層に形成し、少なくとも 0.5 H～0.8 H の範囲を天然石英ガラス内層又は天然及び合成混合石英ガラス内層に形成し、残りの内層を合成石英ガラス、天然石英ガラス又は天然及び合成混合石英ガラスのいずれかで形成することを特徴とするシリコン単結晶引上げ用石英ガラスルツボの製造方法。

【請求項 4】 高温雰囲気内にシリカ粉供給ノズルより合成シリカ粉を供給してルツボ基体の底部及びその近傍に合成石英ガラス内層を形成したのち、シリカ粉供給ノズルを移動し、天然シリカ粉又は天然及び合成混合シリカ粉を供給して、ルツボ基体に内層を形成するに当たり、該内層がルツボ基体の底部最下端から直胴部上端面までの高さ（H）に対して少なくとも 0.25 H までが合成石英ガラス層に、少なくとも 0.5 H～0.8 H の範囲が天然石英ガラス層又は天然及

び合成混合石英ガラス層に、残りの内層が合成石英ガラス層、天然石英ガラス層又は天然及び合成混合石英ガラス層のいずれかの層となるようにシリカ粉を供給することを特徴とする請求項 3 記載のシリコン単結晶引上げ用石英ガラスルツボの製造方法。

【請求項 5】ルツボ基体内の高温雰囲気、第一のシリカ粉を供給し、熔融ガラス化してルツボ基体の内表面全体に第一の石英ガラス内層を形成し、次いで第二のシリカ粉を供給し、熔融ガラス化して内層を形成するに当たり、ルツボ基体の底部最下端から直胴部上端面までの高さ（H）に対して少なくとも 0.25 H までを合成石英ガラス内層に、少なくとも 0.5 H～0.8 H を天然石英ガラス内層又は天然及び合成混合石英ガラス内層に形成するように第二のシリカ粉を供給することを特徴とするシリコン単結晶引上げ用石英ガラスルツボの製造方法。

【請求項 6】第一のシリカ粉が合成シリカ粉、第二のシリカ粉が天然シリカ粉又は天然及び合成混合シリカ粉であることを特徴とする請求項 5 記載のシリコン単結晶引上げ用石英ガラスルツボの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】

本発明は、半導体製造用のシリコン単結晶の引上げに使用される石英ガラスルツボ、およびその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

従来、シリコン単結晶の製造には、いわゆるチョクラルスキー法（CZ法）と呼ばれる方法が広く採用されている。このCZ法は、石英ガラスで製造したルツボ内でシリコン多結晶を熔融し、このシリコン融液にシリコン単結晶の種結晶を浸漬し、ルツボを回転させながら種結晶を徐々に引上げ、シリコン単結晶を種結晶を核として成長させる方法である。前記CZ法で製造される単結晶は、高純度であるとともにシリコンウェーハを歩留よく製造できることが必要で、その製造に使用される石英ガラスルツボとしては泡を含まない内層と泡を含み不透明な外

層からなる二層構造の石英ガラスルツボが一般的に用いられている。

#### 【0003】

近年、シリコン単結晶の大口径化に伴い、単結晶の引上げ作業が長時間化することから、石英ガラスルツボに更なる高純度化が要求されるようになってきた。そのため、本出願人らは、透明な内層と不透明の外層とからなる二層構造の石英ガラスルツボの内層を、合成シリカ粉で形成したルツボを提案した（特許第2811290号、特許第2933404号等）。合成石英ガラスからなる内層を持つ石英ガラスルツボは、不純物の含有量が極めて少なく、シリコン単結晶引上げに伴うルツボ内表面の肌荒れやクリストバライト斑点の発生が非常に少なく、長時間の操業ができ、単結晶引上げの歩留まりを向上できる利点がある。

#### 【0004】

##### 【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、上記内層が合成石英ガラスからなるルツボは、天然石英と比較してポリシリコンを溶融した際、その融液表面が振動し易い。この振動は特に種付けからショルダー形成時、単結晶ボディ部前半といった初期の引上げ工程に多く見られ、種付け作業に時間を要したり、結晶が乱れ、溶かし直し、いわゆるメルトバックを引き起こしたりして生産性を低下させる欠点があった。そこで、本発明者らは合成石英ガラスからなる透明な内層と天然石英ガラスからなる不透明なバルク層の間に合成石英ガラスの不透明な中間層を持つ多層構造のルツボを提案した（特開2001-348294号公報）。しかし、多層構造ルツボは高価な合成粉を多量に使用することから高価となる欠点があった。

#### 【0005】

こうした現状に鑑み、本発明者らは鋭意研究を重ねた結果、シリコン融液表面の振動が直胴部の内表面に、また、単結晶引上げの歩留まりが底部付近の内表面に深く関係することを見出した。そして、シリコン単結晶引上げに用いる石英ガラスルツボ直胴部の特定範囲の内層を天然石英ガラス又は天然合成混合石英ガラスとすることでシリコン融液表面の振動の発生を抑えられること、また、底部付近の特定範囲の内層を合成石英ガラスで形成することでルツボ内表面の肌荒れやクリストバライト斑点の発生がなく長時間の操業が安定して行うことができ高い

歩留まりでシリコン単結晶を引上げることができることを見出して、本発明を完成したものである。すなわち、

【0006】

本発明は、シリコン融液表面の振動の発生を抑え、かつ、長時間の操業においてもルツボ内表面の肌荒れやクリストバライト斑点の発生がなく安定に、かつ高歩留りでシリコン単結晶を引上げることができる石英ガラスルツボを提供することを目的とする。

【0007】

また、本発明は、上記石英ガラスルツボの製造方法を提供することを目的とする。

【0008】

【課題を解決するための手段】

上記目的を達成するための本発明は、底部と直胴部を有するルツボ基体の内表面に内層が設けられたシリコン単結晶引上げ用石英ガラスルツボにおいて、前記内層がルツボ基体の底部最下端から直胴部上端面までの高さ(H)に対して少なくとも0.25Hまでが合成石英ガラス層、少なくとも0.5H~0.8Hの範囲が天然石英ガラス層又は天然及び合成混合石英ガラス層、残りの内層が合成石英ガラス層、天然石英ガラス層又は天然及び合成混合石英ガラス層のいずれかの層であることを特徴とする石英ガラスルツボ及びその製造方法に関する。

【0009】

本発明の石英ガラスルツボは、上述のようにルツボ基体の内表面に内層が設けられたシリコン単結晶引上げ用石英ガラスルツボであって、その内層がルツボ基体の底部最下端から直胴部上端面までの高さ(H)に対して少なくとも0.25Hまでが合成石英ガラス層、少なくとも0.5H~0.8Hの範囲が天然石英ガラス層又は天然及び合成混合石英ガラス層、残りの内層が合成石英ガラス、天然石英ガラス又は天然及び合成混合石英ガラスのいずれかの層である石英ガラスルツボである。ルツボ基体の内表面に前記範囲の天然石英ガラス又は天然ガラスを含む合成ガラス(天然合成混合ガラス)の内層を形成することでシリコン融液の振動を抑えることができる。前記天然石英ガラス又は天然合成混合ガラス内層の

厚さは0.3～3mmの範囲がよい。厚さが0.3mm未満ではシリコン融液の振動抑制効果が少なく、3mmを超えて内層を形成しても融液の振動抑制効果の向上がみられず好ましくない。

#### 【0010】

一方、シリコン単結晶の歩留まりは、単結晶の有転移化により左右されるが、その殆どが引き上げ工程後半、即ちシリコン融液との接触時間の長いルツボの0.25Hまでの内層の肌荒れやクリストバライト斑点の発生に起因する。そこで、本発明の石英ガラスルツボでは、肌荒れやクリストバライト斑点の発生が少ない合成石英ガラスで少なくとも0.25Hまでの内層を形成するものである。内層の厚さは0.5～5mmの範囲がよい。内層の厚みが0.5mm未満では肌荒れやクリストバライト斑点の発生を抑制する効果が少なく歩留が悪く、5mmを超えるとコスト高となり好ましくない。

#### 【0011】

上述の石英ガラスルツボの内層を形成する天然合成混合シリカ粉は、天然シリカ粉を30%以上含有するのがよい。

#### 【0012】

#### 【発明の実施の形態】

本発明の石英ガラスルツボの構造を図1に示す。1は石英ガラスルツボ、2はルツボの底部、3は直胴部、4は内層、5は合成石英ガラス内層、6は天然ガラス又は天然合成混合石英ガラス内層である。前記石英ガラスルツボを製造する装置の態様を図2に示す。図2において、7は回転する型、8はルツボ基体、9はシリカ粉供給手段、10は板状の蓋体、11は流量制御バルブ、12は電源、13はアーク電極、14はシリカ粉供給ノズル、15は高温雰囲気である。本発明の石英ガラスルツボは、シリカ粉供給手段9から天然シリカ粉を回転する型7に導入し、ルツボ形状に成形したのち、その中にアーク電極13を挿入し、ルツボ形状体の開口部を板状の蓋体10で覆い、アーク電極13により該ルツボ形状体の内部キャビティーを高温ガス雰囲気にして少なくとも部分的に溶融ガラス化して半透明のルツボ基体8を形成し、次いでシリカ粉供給手段9から流量規制バルブ11で供給量を調節しながら第一のシリカ粉を高温雰囲気15に供給し、溶融

ガラス化して石英ガラス内層を所望の位置に形成し、次いで第二のシリカ粉をシリカ粉供給ノズル 1 4 から高温雰囲気 1 5 に供給し、熔融ガラス化して該シリカ粉からなる石英ガラス層を所望の位置に形成するに際し、合成石英ガラス内層 5 を底部外表面最下端から直胴部上端面までの高さ (H) に対して少なくとも 0. 2 5 H まで形成し、天然石英ガラス内層又は天然及び合成混合石英ガラス内層 6 を少なくとも 0. 5 H ~ 0. 8 H の範囲に形成し、残りの内層を合成石英ガラス、天然石英ガラス又は天然及び合成混合石英ガラスで形成して製造される。前記製造において、(i) 合成シリカ粉を高温雰囲気内に供給し、熔融ガラス化して少なくとも 0. 2 5 H まで合成石英ガラス内層に形成したのち、前記合成シリカ粉を供給したシリカ粉供給ノズル 1 4 を必要に応じて上下左右に移動し、天然シリカ粉又は天然及び合成混合シリカ粉を供給して少なくとも 0. 5 H ~ 0. 8 H の範囲を天然石英ガラス又は天然及び合成混合石英ガラス内層 6 に形成する方法、(i i) 天然シリカ粉又は天然及び合成混合シリカ粉をシリカ粉供給ノズル 1 4 から供給し、熔融ガラス化してルツボ基体の少なくとも 0. 5 H ~ 0. 8 H の範囲を天然石英ガラス内層又は天然及び合成混合石英ガラス内層 6 に形成したのち、シリカ粉供給ノズル 1 4 を必要に応じて上下左右に移動し、合成シリカ粉をシリカ粉供給ノズル 1 4 から供給し、熔融ガラス化して底部外表面最下端から少なくとも 0. 2 5 H までを合成石英ガラス内層 5 に形成する方法、(i i i) シリカ粉供給ノズル 1 4 から第一のシリカ粉を供給し、熔融ガラス化してルツボ基体の内表面全体に第一の石英ガラス内層を形成し、次いで第二のシリカ粉を供給して所望の位置に第二の石英ガラス内層を形成する製造方法など好ましく使用される。そして、この (i i i) の製造方法においては、第一のシリカ粉を合成シリカ粉とし、第二のシリカ粉を天然シリカ粉又は天然及び合成混合シリカ粉とし、該シリカ粉からなる天然石英ガラス又は天然及び合成混合石英ガラス内層 6 を少なくとも 0. 5 H ~ 0. 8 H の範囲に形成する方法がよい。

### 【0 0 1 3】

#### 【実施例】

以下に実施例を挙げて本発明を更に具体的に説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

## 実施例 1

図 2 に示す装置を用い、回転する型 7 内に純化处理した高純度の天然シリカ粉を投入し、遠心力により石英ガラスルツボ形状に形成し、その内にアーク電極 1 3 を挿入し、開口部を板状の蓋体 1 0 で覆い、アーク電極 1 3 により内部キャビティ内を高温ガス雰囲気とし、熔融ガラス化し、冷却して半透明石英ガラスルツボ基体 8 を作成した。次いで型 7 を回転させながらアーク電極 1 3 で半透明石英ガラスルツボ基体 8 の内部キャビティを高温雰囲気 1.5 にしたのち、シリカ粉供給ノズル 1 4 から合成シリカ粉を  $100 \text{ g/min}$  で供給し、半透明石英ガラスルツボ基体 8 の内表面に約  $2 \text{ mm}$  厚さの合成石英ガラス内層 5 をルツボ基体の底部外表面最下端から直胴部上端面までの高さ (H) に対して少なくとも  $0.4 \text{ H}$  まで融合一体化した。次にシリカ粉供給ノズル 1 4 を上方に移動し、シリカ粉供給手段 9 から天然シリカ粉を  $100 \text{ g/min}$  で供給し、半透明の石英ガラスルツボ基体 8 の  $0.4 \text{ H} \sim 1.0 \text{ H}$  の内表面に熔融一体化して約  $2 \text{ mm}$  の天然石英ガラス内層 6 を形成した。得られた石英ガラスルツボの直径は  $24 \text{ インチ}$  であった。この石英ガラスルツボに多結晶シリコンを充填、熔融して CZ 法で単結晶の引上げを行ったところ、シリコン融液表面の振動は発生せず、約  $90 \text{ 時間}$  の操業後、完全な単結晶が得られた。

【 0 0 1 4 】

## 実施例 2

回転する型内に純化处理した高純度の天然シリカ粉を投入し、遠心力により石英ガラスルツボ形状に形成し、その内にアーク電極を挿入し、開口部を板状の蓋体で覆い、アーク電極により内部キャビティ内を高温ガス雰囲気とし、熔融ガラス化し、冷却して半透明石英ガラスルツボ基体を作成した。次いで型を回転させながらアーク電極で半透明石英ガラスルツボ基体内を高温雰囲気にしたのち、シリカ粉供給ノズルから合成シリカ粉を  $100 \text{ g/min}$  で供給し、半透明石英ガラスルツボ基体の内表面全体を約  $2 \text{ mm}$  厚さの合成石英ガラス内層を熔融一体化した。次いでシリカ供給手段 9 から合成シリカ粉を  $50 \text{ g/min}$ 、また天然シリカ粉を  $50 \text{ g/min}$  で前記シリカ供給ノズルを通じ所定の位置から供給し、ルツボ基体の  $0.45 \text{ H}$  から  $0.9 \text{ H}$  の内表面に約  $0.8 \text{ mm}$  の天然合成混合

ガラス内層を形成した。得られた石英ガラスルツボの直径は24インチであった。この石英ガラスルツボに多結晶シリコンを充填、溶融してCZ法で単結晶の引上げを行ったところ、シリコン融液表面の振動は発生せず、約90時間の操業後、完全な単結晶が得られた。

#### 【0015】

##### 比較例1

図2に示す装置を用い、回転する型7内に純化处理した高純度の天然シリカ粉を投入し、遠心力により石英ガラスルツボ形状に形成し、その内にアーク電極13を挿入し、開口部を板状の蓋体10で覆い、アーク電極13により内部キャビティを高温ガス雰囲気とし、溶融ガラス化し、冷却して半透明石英ガラスルツボ基体8を作成した。次いで型7を回転させながらアーク電極13で半透明石英ガラスルツボ基体8の内部キャビティ内を高温雰囲気15にしたのち、合成シリカ粉を100g/minで供給し、半透明石英ガラスルツボ基体8の内表面に融合一体化して約2mmの合成石英ガラス内層を形成した。得られた石英ガラスルツボの直径は24インチであった。この石英ガラスルツボに多結晶シリコンを充填、溶融してCZ法で単結晶の引上げを行ったところ、シリコン融液表面に激しい振動が発生し、種付け作業を行うことができず、操業を中止した。

#### 【0016】

##### 比較例2

図2に示す装置を用い、回転する型7内に純化处理した高純度の天然シリカ粉を投入し、遠心力により石英ガラスルツボ形状に形成し、その内にアーク電極13を挿入し、開口部を板状の蓋体10で覆い、アーク電極13により内部キャビティを高温ガス雰囲気とし、溶融ガラス化し、冷却して半透明石英ガラスルツボ基体8を作成した。次いで型7を回転させながらアーク電極13で半透明石英ガラスルツボ基体8の内部キャビティ内を高温雰囲気15にしたのち、天然シリカ粉を100g/minで供給し、半透明石英ガラスルツボ基体8の内表面に融合一体化して約2mmの天然石英ガラス内層を形成した。得られた石英ガラスルツボの直径は24インチであった。この石英ガラスルツボに多結晶シリコンを充填、溶融してCZ法で単結晶の引上げを行ったところ、シリコン融液表面の振動

は発生しなかったが、約 5 0 時間が過ぎた頃、単結晶に乱れが生じ、完全な単結晶は得られなかった。

【 0 0 1 7 】

【発明の効果】

本発明のシリコン単結晶引上げ用石英ガラスルツボでは、シリコン単結晶を引き上げる際に起こるシリコン融液表面の振動が少ない上に、ルツボ内表面に肌荒れやクリストバライト斑点の発生がなく安定して高歩留でシリコン単結晶を引き上げることができる。前記石英ガラスルツボは、内層を形成するための合成シリカ粉、天然シリカ粉又は天然および合成混合シリカ粉をルツボ基体の夫々の部位に供給し、溶融ガラス化するという簡単な製造方法で製造でき、その工業的価値は高いものがある。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の石英ガラスルツボの概略断面図を示す。

【図 2】

本発明の石英ガラスルツボの製造装置の概略図を示す。

【符号の説明】

- 1 : 石英ガラスルツボ
- 2 : 底部
- 3 : 直胴部
- 4 : 内層
- 5 : 合成石英ガラス内層
- 6 : 天然又は天然合成混合石英ガラス内層
- 7 : 回転する型
- 8 : ルツボ基体
- 9 : シリカ粉供給手段
- 1 0 : 板状の蓋体
- 1 1 : 流量規制バルブ
- 1 2 : 電源

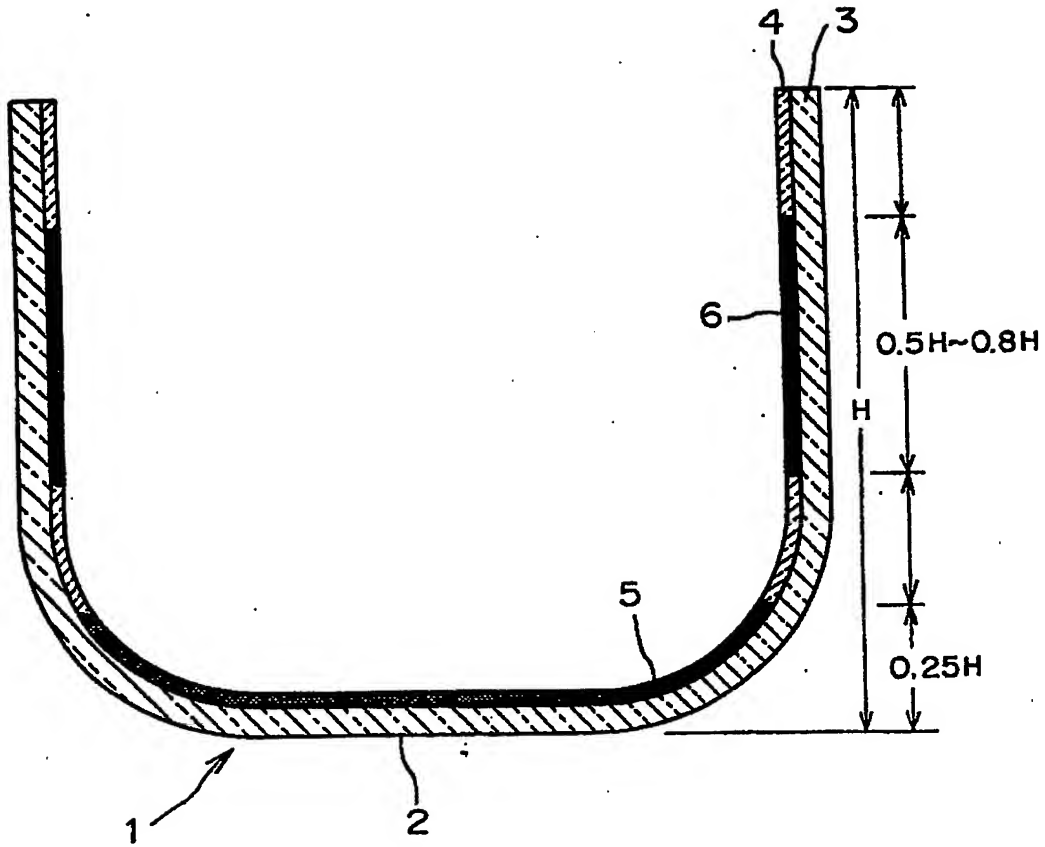
1 3 : アーク電極

1 4 : シリカ粉供給ノズル

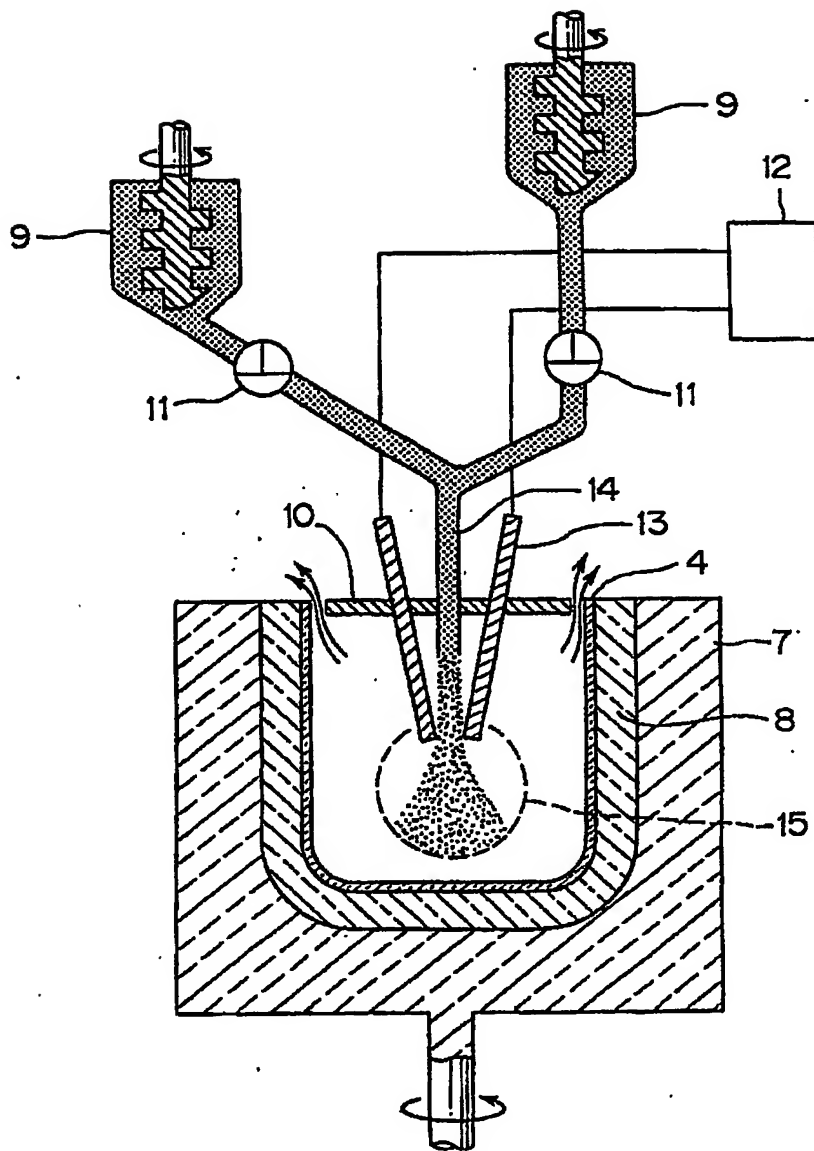
1 5 : 高温雰囲気

【書類名】図面

【図1】



【図 2】



【書類名】

要約書

【要約】

【目的】シリコン融液表面の振動の発生が少なく、かつ、肌荒れやクリストバライト斑点の発生がなく長時間の操業においても安定で高歩留まりでシリコン単結晶を引上げることができる石英ガラスルツボおよびその製造方法を提供すること

【解決手段】底部と直胴部を有するルツボ基体の内表面に内層が設けられたシリコン単結晶引上げ用石英ガラスルツボにおいて、前記内層がルツボ基体の底部最下端から直胴部上端面までの高さ（H）に対して少なくとも $0.25H$ までが合成石英ガラス層、少なくとも $0.5H \sim 0.8H$ の範囲が天然石英ガラス層又は天然及び合成混合石英ガラス層、残りの内層が合成石英ガラス層、天然石英ガラス層又は天然及び合成混合石英ガラス層のいずれかの層であることを特徴とする石英ガラスルツボ、及び該シリコン単結晶引上げ用石英ガラスルツボの製造方法

【選択図】

図 1

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2002-223999
受付番号	50201135834
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0094
作成日	平成14年 8月 1日

<認定情報・付加情報>

【提出日】 平成14年 7月31日

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000190138]

1. 変更年月日 1990年 8月 8日

[変更理由] 新規登録。

住 所 東京都新宿区西新宿1丁目22番2号  
氏 名 信越石英株式会社